

1964年福岡降下物中のウラン，トリウム及び核分裂生成物  
北原照央\*・本多照幸\*\*・廣瀬勝己\*\*\*・五十嵐康人\*\*\*・青山道夫\*\*\*

Study on uranium, thorium and fission products of deposition samples  
collected at Fukuoka in 1964

Akihiro Kitahara\*, Teruyuki Honda\*\*, Katsumi Hirose\*\*\*, Yasuhito Igarashi\*\*\* and  
Michio Aoyama\*\*\*

- \* 武蔵工業大学エネルギー量子工学専攻, Graduate School of Energy Science and Nuclear Engineering, Musashi Institute of Technology
- \*\* 武蔵工業大学原子力研究所, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology
- \*\*\* 気象庁気象研究所, Meteorological Research Institute

1. 背景

降下物は起源として、成層圏からのフォールアウト、大陸からの黄砂、さらにその降下地域周辺からの土壌、岩石の等の風化物等が考えられる。降下物中のウラン、トリウム及び核分裂生成物起源の推定は、環境問題がとりだたされる近年、大気環境の指標の一つとして大きな役割を果たすと思われる。

1964年は、我国において核実験による環境汚染が最も顕著に現れた年であり、1963年にアメリカ、ソビエト連邦の部分的核実験禁止条約が発効されるまでの核実験、1964年の中国における第一回大気圏内核実験の影響が、我国の大気環境にどのように反映されたか解明することは、極めて重要な意義を持っている

2. 目的

1964年福岡降下物と近年降下物のU, Th等

を用いた比較をするため、中性子放射化分析を適用し、既に公表されている核分裂生成物 (<sup>137</sup>Cs) の降下量(濃度)の結果とともに、1964年福岡降下物試料の特性を解明することを目的とする。

3. 実験

3-1 試料の採取

本研究の試料は、1964年1月～12月まで、福岡管区気象台に設置したプラスチック製大型水盤約0.5m<sup>2</sup>に捕集された月間降下物である。収集された降下物試料は蒸発濃縮して固体状とし、直径約6cmのポリエチレン容器に充填した。ここまでの作業は、気象研究所で既に遂行済みである。

3-2 照射試料の作製

固体状試料を電子天秤により秤り取り、ポリエチレン袋に密封し再度重量を秤った。さらに、二重にポリエチレン袋で密封し照射試料とした。

表1 照射測定条件と定量元素

照射場所	出力 (MW)	熱中性子束 [n/cm <sup>2</sup> ・s]	照射時間	照射量 (mg)	冷却時間	測定時間 (sec)	定量元素
TB	3.5	4.0・10 <sup>13</sup>	20min	30	1, 4wks	1500, 7000	Na, Cl, Sc, Cr, Fe, Zn, Br, Sb, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Lu, Hf, Ta, Th, <sup>235</sup> U
気送管	0.35	3.2・10 <sup>12</sup>	30sec	10	4min, 6hrs	200, 300	Al, Ti, V, Mn, Dy,

### 3-3 中性子照射

中性子源は日本原子力研究所の JRR - 4 を使用した。短寿命核種の照射には気送管 (PN), 長寿命核種には T パイプ (TB) を利用した。表 1 に照射場所の中性子束密度, 並びに照射条件を記載する。

### 3-4 $\gamma$ 線の測定

照射後試料の二重目のポリエチレン袋を新しいものと交換し, 短寿命核種については, 日本原子力研究所内で, 長寿命の核種については, 武蔵工

業大学原子力研究所の高純度 Ge 半導体検出器 (相対計数効率: 19.8 %, 半値幅 1.332Mev において 1.79 keV) 及び多チャンネル波高分析器 (Seiko EG & G, MCA7700) を用いて,  $\gamma$  線の測定を行った。測定条件を表 1 に示す。

### 4. 結果及び考察

最初に, 降水量と収量の関係を図 1 に示す。図 1 より 1964 年福岡降下物試料の収量は, 7 月, 8 月がピークであることと収量と降水量の増減が, ほぼ逆の対応になっていることが分かる。また図 2 では, 収量が近年の他の試料よりも通年において数倍から十数倍多く, 特に 7 月, 8 月は 13 倍以上と他の月と比して格段に多い事が分かる。これは, 7 月, 8 月の降水量が少なかったことに起因する。

1964 年福岡降下物試料は, 放射化分析により延べ 23 元素 (Na, Al, Cl, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Zn, Br, Sb, Ba, La, Ce, Sm, Eu, Dy, Lu, Hf, Ta, Th,  $^{238}\text{U}$ ) が sub ppm ~% のレベルで定量された。U は, 核実験の影響から同位体比が天然の存在比からずれている可能性があるため, U 全

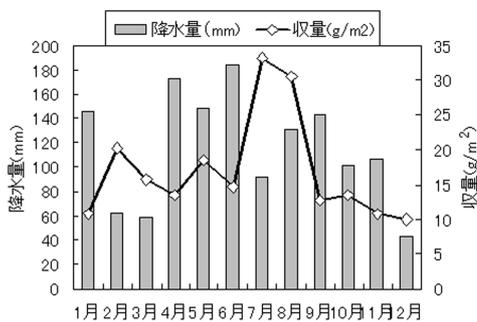


図 1 1964 年福岡降下物における収量と降水量

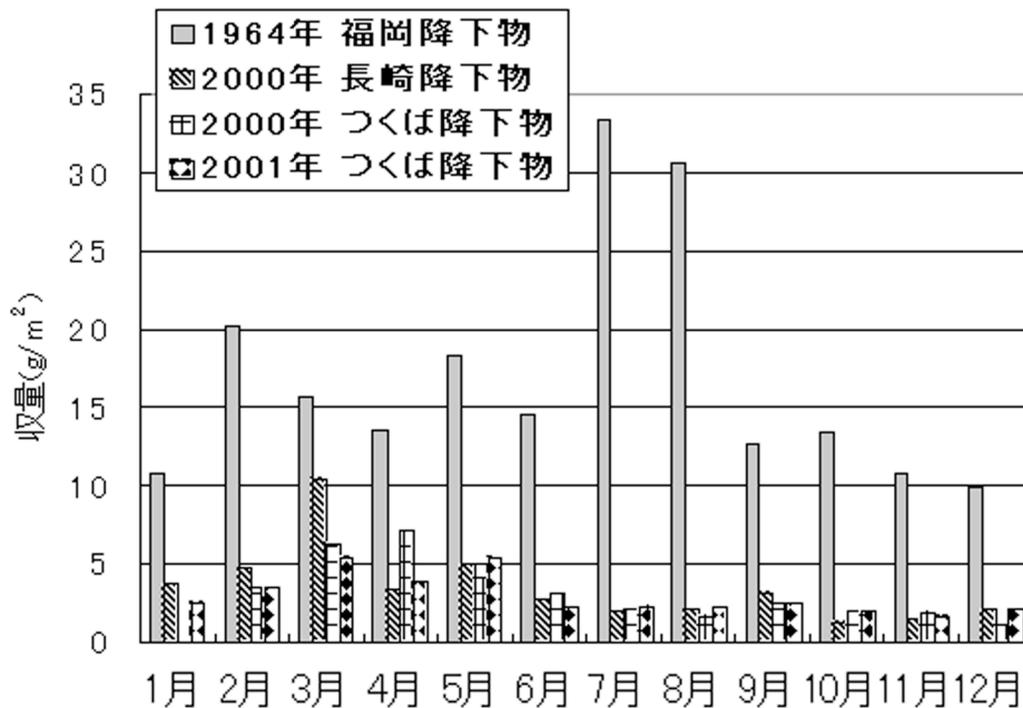


図 2 1964 年と近年降下物における月別収量の比較

量ではなく  $^{238}\text{U}$  として定量した。また、U から発生する妨害核種の補正は、U の同位体比が未知のため補正しなかった。ただし、La, Ce の定量値が最大で有効数字の 2 ~ 3 桁目にわずかに影響する程度である。(他の 3 試料は U 全量として定量)

図 3 は、2000 年長崎降下物に対する 1964 年福岡降下物中の元素濃度の比である。図 3 より、1964 年福岡降下物は長崎と比べて元素ごとの濃度が Sb と Th の一部を除いて数倍 ~ 60 倍以上と高いことがわかる。以上より、1964 年福岡降下物試料は、近年の降下物試料とは異質なものであると思われる。

1964 年福岡降下物と 2000 年長崎降下物中の  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度と両者の比を図 4 に、また 1964 年試料と近年 3 試料における U( $^{238}\text{U}$ )/Th 比の月別変化を図 5 に示す。図 4 から福岡降下物中の  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度が 11 月から少し上昇していることが分かる。この時期、1964 年 10 月 16 日

に中国のロプノルでは第 1 回大気圏内核実験が行われていた。しかし、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の対流圏における存在量の半減期は約 30 日であり、11 月より 12 月の方が  $^{137}\text{Cs}$  濃度が高くなっていることから、中国核実験の影響はほとんど考えられない。

次に、図 5 において、1964 年福岡の  $^{238}\text{U}/\text{Th}$  比は 3 月 ~ 5 月において特に高く、定量されたその他の月においても、他の 3 試料より高い値を示している。これは Th の濃度が低いということもわずかにあるが、 $^{238}\text{U}$  の濃度が明らかに高かったことが主な原因である。また、図 4 の  $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度も 3 月 ~ 5 月にピークがあり、長崎 (2000) と比しておよそ 1000 ~ 2400 倍という極めて高い値を示している。

しかし、両試料における  $^{137}\text{Cs}$  の起源と降下のメカニズムは全く異なる。即ち、1964 年福岡降下物中の  $^{137}\text{Cs}$  は、成層圏からの降下であり、2000 年長崎降下物では一度降下した  $^{137}\text{Cs}$  が黄砂等に吸着して再浮遊し、風送ダストとして長崎

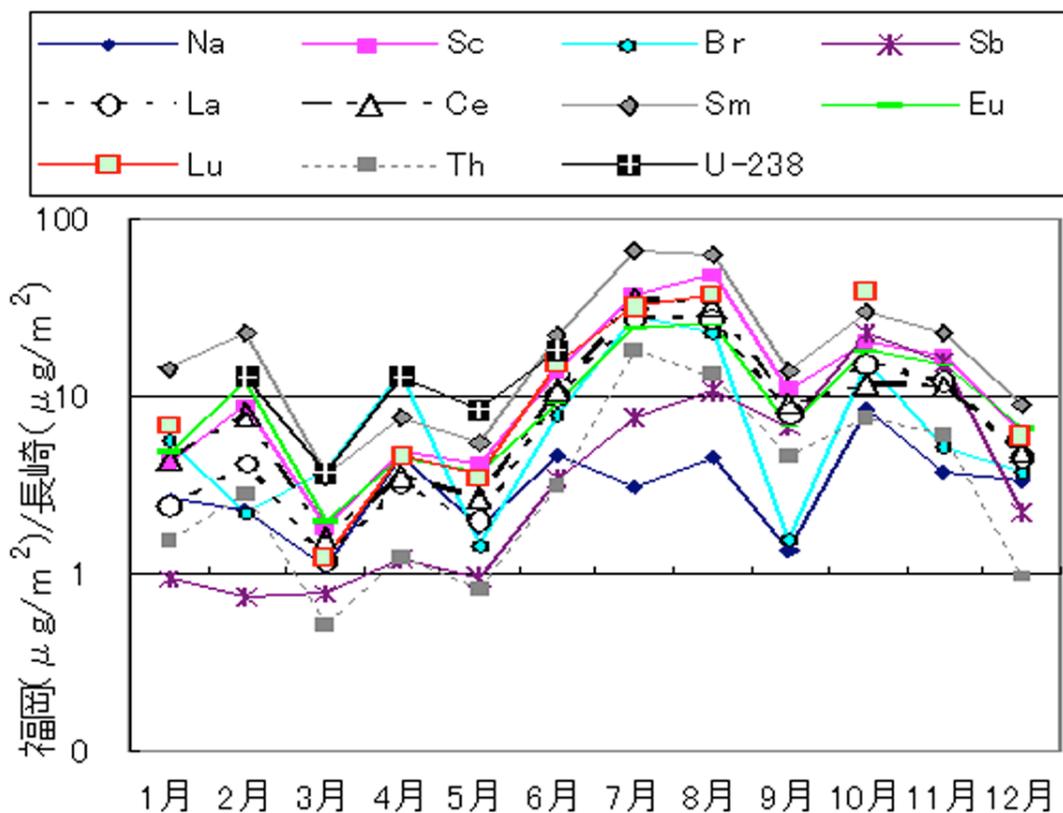


図 3 2000 年長崎降下物に対する 1964 年福岡降下物中の元素濃度の比

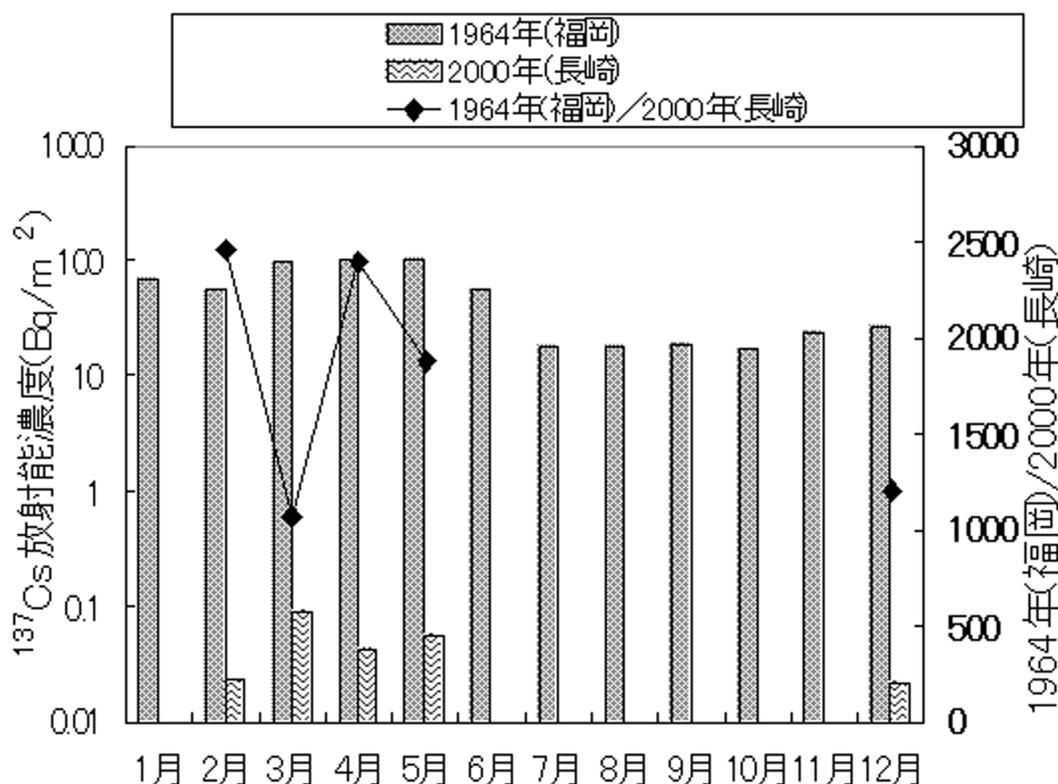


図4 1964年福岡降下物と2000年長崎降下物中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度の比較

に運ばれたものと思われる。

一般に1963年に部分的核実験禁止条約が発効されて、それまでの米ソの核実験の影響は、1963～64年にピークが現れていることが分かっており、核実験により成層圏まで昇った粉塵は一年で約半分降下することも知られている。従って1964年福岡降下物試料は1961～62年を中心とした米ソによるメガトン級大気圏内核実験の影響を強く受けているものと思われる。また、ソ連（ノバヤ・ゼムリア島）、アメリカ（クリスマス島、ジョンストン島）ではこの時期、水爆による実験が主であり、爆弾を構成する外側を<sup>238</sup>Uがとりまく構造から、図5の<sup>238</sup>U/Th比が明らかに高いことと一致する。

図5における9月の<sup>238</sup>U/Th比は、周辺の月にはプロットがないにもかかわらず非常に高い値を示している。この原因はThの濃度が特に低かったことに起因しており、<sup>238</sup>Uの濃度はそれほど高くない。9月の周囲の月（8月、10月）で

プロットが無いのは<sup>238</sup>Uが定量されなかったためである。

以上のように1月～6月、特に3月～5月に<sup>137</sup>Csと<sup>238</sup>U濃度が高くなっているのは、この時期、成層圏と対流圏における大気との交換が活発に起こることによるものと考えられる。一方、7月～12月は、成層圏と対流圏大気との交換がわずかであるため、両核種とも濃度が低くなっているものと考えられる。従って、<sup>137</sup>Csと<sup>238</sup>U濃度の季節変化は、主に成層圏と対流圏大気との交換活動の季節変化に起因しているものと考えられる。

## 5. 結論

(1) 試料の収量は、近年の降下物試料よりも通年において数倍～十数倍と多く、特に7月は13倍以上と多かった。また、元素ごとの濃度も2000年長崎降下物と比べて、SbとThを除き数倍～60倍以上と高かった。

(2) 3月～5月及び9月の試料は、<sup>238</sup>U/Th

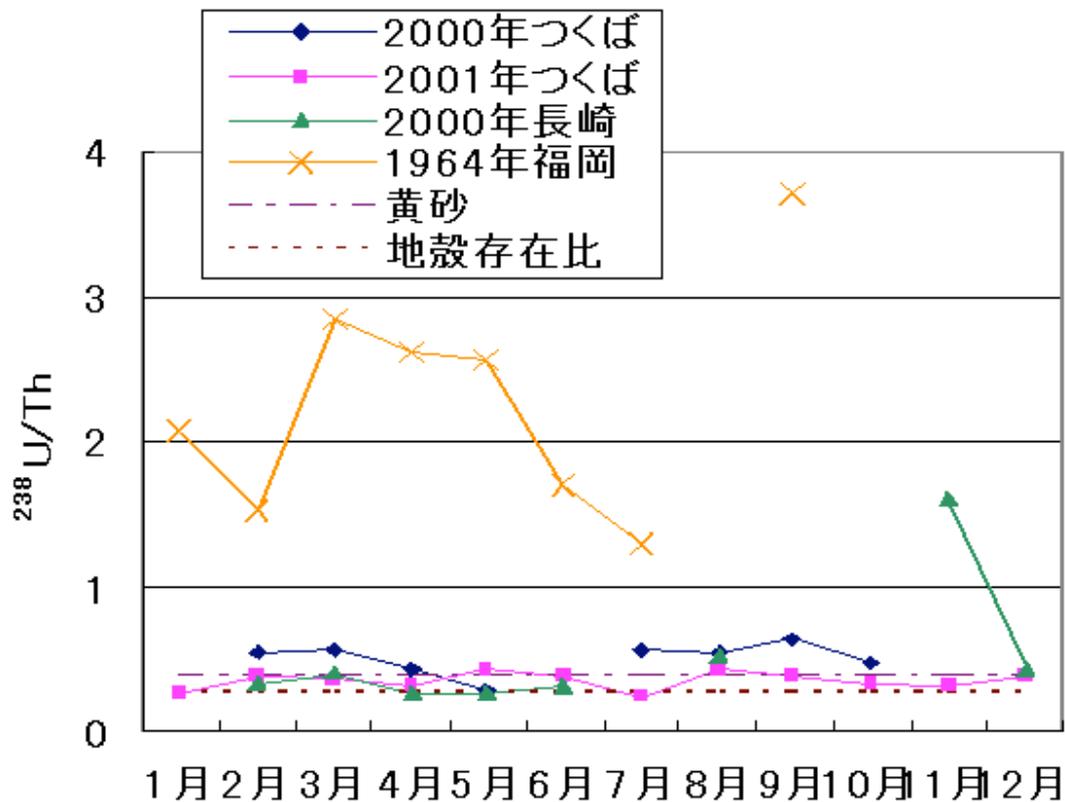


図5  $^{238}\text{U}/\text{Th}$  比の月別変化

比が高く、 $^{137}\text{Cs}$  の放射能のピークも3月～5月に長崎（2000）と比して1000～2400倍という極めて高い値を示していることから、1961～62年を中心とした米ソによる大気圏内水爆核実験の影響を強く受けているものと思われる。

（3） $^{137}\text{Cs}$  と  $^{238}\text{U}$  濃度が、特に3月～5月で高く、7月以降で低くなっているのは、両核種の濃度が、主に成層圏と対流圏における大気の変換活動に支配されているためと考えられる。

#### 文献

- Y. Katsuragi, 1983, A study of  $^{90}\text{Sr}$  fallout in Japan, Pap. Meteor. Geophys., 33, 277-291
- 三宅泰雄, 葛城幸雄, 1970, 最近の日本における放射性塵の降下, 天気, 17, 593-598
- 柳下智, 2002, 長崎気候区における降下物中の化学成分並びに放射性核種の分布に関する研究, 平成13年度武蔵工業大学修士論文
- 石田幸三, 2003, 2001年つくば降下物の中性子放射化分析並びに定量元素の挙動に関する研究, 平成14年度武蔵工業大学卒業論文